

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-067502

(43)Date of publication of application : 12.03.1996

(51)Int.Cl.

C01B 3/38  
H01M 8/06

(21)Application number : 06-205246

(71)Applicant : NGK INSULATORS LTD  
CHUBU ELECTRIC POWER CO INC

(22)Date of filing : 30.08.1994

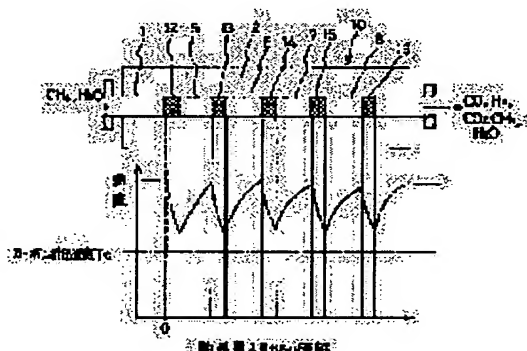
(72)Inventor : MISAWA HIDENOBU  
MATSUURA ICHIRO  
EZAKI YOSHIMI  
HATTORI MASATOSHI

## (54) FUEL REFORMER

### (57)Abstract:

**PURPOSE:** To provide a fuel reformer having small volume of a catalytic layer and small catalytic amount, capable of attaining cost down and carrying out reforming reaction in high efficiency and miniaturizing.

**CONSTITUTION:** A gas which flows into a reacting tube 1 is discharged from the outlet of the first catalyst part 12 before lowering to a carbon deposition temperature  $T_c$  in the first catalyst part 12 and the gas is heated by a heating furnace 2 in a heat transfer promoting part 5 on the downstream side of the first catalyst part to raise the temperature of the gas. Then, the gas is fed into the second catalyst part 13 and reforming reaction of the gas by the second catalyst part 13 is promoted and the gas is discharged before the temperature of the gas is lowered to a temperature lower than a carbon deposition temperature  $T_c$  also in the second catalyst part 13. Since the gas alternately flows into catalytic parts 12, 13, 14, 15 and 16 and heat transfer promoting parts 5, 6, 7 and 8, reaction temperature is always retained to a temperature exceeding the carbon deposition temperature  $T_c$ . As a result, deposition of carbon is suppressed and operation having low S/C value is made possible and efficiency of a fuel cell system can be improved.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

14.03.2000

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than

the examiner's decision of rejection or  
application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3432298

[Date of registration] 23.05.2003

[Number of appeal against examiner's decision of  
rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

**\* NOTICES \***

**JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.**

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

**CLAIMS**

---

[Claim(s)]

[Claim 1] The coil which circulates material gas, and the 1st catalyst section arranged within [ this ] a reaction, It has the 2nd catalyst section which keeps spacing and is arranged from this 1st catalyst section, and a heater for heating said coil. The fuel reformer characterized by having the catalyst bed which set up the shaft-orientations die length of said catalyst section so that the temperature in said 1st catalyst section and the 2nd catalyst section might be maintained at the temperature of extent which avoids a carbon deposit.

[Claim 2] The fuel reformer according to claim 1 characterized by said catalyst section being a honeycomb-like catalyst.

[Claim 3] The fuel reformer according to claim 1 to which said catalyst section is characterized by being a thin layer within predetermined die length in a flow direction.

[Claim 4] The fuel reformer according to claim 1 characterized by said catalyst section being a doughnut-like.

[Claim 5] The fuel reformer according to claim 4 characterized by making an one direction carry out gas circulation of the catalyst section of the shape of said doughnut.

[Claim 6] The fuel reformer according to claim 4 characterized by passing a part for a hole for the gas among the doughnut-like catalyst sections after carrying out gas circulation of the catalyst section of the shape of said doughnut.

[Claim 7] The fuel reformer according to claim 1 characterized by there being two or more heat transfer promotion sections between the \*\*\*\*\* aforementioned catalyst sections mutually with said catalyst section in said catalyst bed.

[Claim 8] The shaft-orientations die length of said catalyst section is a fuel reformer according to claim 1 to which the shaft-orientations die length of the catalyst section of the downstream is relatively characterized by the \*\*\*\*\*.

[Claim 9] The fuel reformer according to claim 1 characterized by preparing a heat transfer accelerator in the heat transfer promotion section between the adjacent catalyst sections.

[Claim 10] The fuel reformer according to claim 1 characterized by setting up a heater so that the direction of an outlet side may receive the big amount of heating from an entrance side relatively per catalyst section of a piece.

[Claim 11] Said heater is a fuel reformer according to claim 10 characterized by being any one piece or two heaters or more, a heat transfer heater and a burner.

---

[Translation done.]

## \* NOTICES \*

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

## DETAILED DESCRIPTION

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Industrial Application] This invention relates to the structure of the catalyst bed section arranged in fuel reformers, such as a fuel cell system and a hydrogen generator, by the detail about a fuel reformer.

[0002]

[Description of the Prior Art] After a thermal power station, nuclear electric power generation, etc. change the chemical energy of a fossil fuel into heat energy or nuclear energy, a fuel cell obtains direct electrical energy from chemical energy to obtaining electrical energy. A reactant is the chemical cell continuously supplied from the outside, the body of a fuel cell, a fuel reformer, and power converters are the main components, a control unit, a waste heat recovery equipment, etc. join these components, and this fuel cell constitutes a fuel cell system.

[0003] Among these, a fuel reformer is equipment which reforms the material gas which uses fuel gas and steams, such as methane, as a principal component to hydrogen Rich's reformed gas, and consists of a reforming machine which uses material gas as hydrogen, carbon dioxide gas, and a carbon monoxide, and a CO transformer which makes the carbon monoxide in reformed gas below threshold limit value. The pellet type catalyst, the honeycomb-like catalyst, etc. are known as a catalyst of a reforming machine.

[0004] When material gas passes the catalyst bed filled with the reforming machine within the reaction, reforming of the material gas is carried out and it is supplied to CO transformer. Since it is a steam reforming process at this time, by being heated with a heater, the reforming reaction within a reaction is promoted and it is changed into the reformed gas with which material gas contains hydrogen, carbon dioxide gas, and a carbon monoxide.

(Reforming reaction)  $\text{CH}_4 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow 3\text{H}_2 + \text{CO}$  - endothermic reaction (water gas shift reaction)  $\text{CO} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO}_2 + \text{H}_2$  - exothermic reaction [0005]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] However, since the above-mentioned reforming reaction is endothermic reaction, during reaction advance, the big temperature reduction in a catalyst happens and, as for the conventional fuel reformer, reactivity also falls in connection with it. The above-mentioned reforming reaction is  $\text{H}_2\text{O}/\text{CH}_4$  of reactant gas, in order to prevent a deposit of Carbon C in the case of a reforming reaction at this time, although it goes on in the temperature of 500 degrees C or more. The value (this ratio is called S/C value) is made into the value of 3-4. The theoretical ratio of S/C value of a reforming reaction is 1 ( $\text{S}/\text{C}=1$ ).

[0006] However, if this S/C value are enlarged, generally the system efficiency of a fuel cell will fall. This is for a heating value required for heating of a superfluous steam to increase. Generally, as a coil is shown in drawing 10, if a heating furnace 2 is installed in the periphery section of a coil 1, the catalyst section 3 is formed in the interior of a coil 1 and fuel gas and steams, such as methane, are poured in the direction of an arrow head from the upstream, temperature will fall by endoergic [ of a reforming reaction ] as it goes to the downstream by the catalyst section 3 from the entrance side of the catalyst section then. A fall of this temperature becomes easy to deposit carbon. The amount of a steam is made

[ many / comparatively ] in order to make it hard to occur this carbon deposit reaction.

[0007] Next, the temperature of the honeycomb core at the time of using for the catalyst section the honeycomb support which supports a catalyst, and the temperature distribution of the honeycomb periphery section are shown in drawing 9 . Experiment conditions were set to coil outer wall temperature: 900 degree C and quantity-of-gas-flow  $SV=5000\text{hr}^{-1}$  here. The reaction invert ratio was 90%. Since the heat transfer effectiveness by the heating furnace from the periphery section to a core is low in a honeycomb-like catalyst so that this drawing 9 may show (i.e., since the thermal conductivity to the direction of a core is bad), the amount of temperature falls in a core is quite large, runs short of supply of heat in a core, and has a problem of it becoming impossible to reach temperature required for a reaction in a catalyst core depending on the amount of supply of material gas.

[0008] The purpose of this invention is to offer the fuel reformer which can make S/C value small, in order to raise the system efficiency of a fuel cell. Moreover, other purposes of this invention are to offer the fuel reformer which can be operated by low S/C value. The volume of a catalyst bed is small, there are few amounts of catalysts, the cost can be cut down, and purpose that this invention is still more nearly another is to offer the fuel reformer in which the miniaturization which can perform a reforming reaction efficiently is possible.

[0009]

[Means for Solving the Problem] The coil which circulates material gas by claim 1 at the fuel reformer of this invention, The 1st catalyst section arranged within [ this ] a reaction, and the 2nd catalyst section which keeps spacing and is arranged from this 1st catalyst section, It has the 1st catalyst section and the heat transfer promotion section which gives heat from the exterior between the 2nd catalyst section, and is characterized by setting up the shaft-orientations die length of said catalyst section so that the temperature in the 1st catalyst section and the 2nd catalyst section may be maintained at the temperature of extent which avoids a carbon deposit.

[0010] Said catalyst section can use the catalyst and pellet type catalyst which are supported by the honeycomb structure object. When using a honeycomb catalyst, since the touch area of gas and a catalyst is relatively large, reaction effectiveness improves. It is desirable that it is a thin layer within the die length predetermined in said catalyst section to a flow direction. Said catalyst bed is formed in the shape of a doughnut, and annular. In this case, heat can be received from the direction outside of a path of a catalyst bed, and the both sides of the direction inside of a path. After being able to make an one direction carry out gas circulation of the catalyst bed of the shape of said doughnut and carrying out gas circulation of the catalyst bed part of the shape of said doughnut, a part for a hole can also be passed for the gas among doughnut-like catalyst beds.

[0011] Two or more said 2nd catalyst section can be prepared. That is, by preparing the catalyst section and the heat transfer promotion section by turns, axial length of a coil can be shortened relatively and a reaction invert ratio can be improved. The heat transfer promotion section is prepared between the adjacent catalyst sections, and a heat transfer accelerator is prepared in the upstream of this heat transfer promotion section. In this case, the temperature up of the temperature of the gas discharged from the catalyst section outlet of the upstream of the heat transfer promotion section can be carried out quickly.

[0012] A heater is set up so that the direction of an outlet side may receive the big amount of heating from an entrance side relatively per catalyst section of a piece. This is because gas temperature can be effectively gone up near the outlet rather than a catalyst section inlet port since gas temperature is relatively low. A heat transfer heater, a burner, etc. can be used for said heater.

[0013]

[Function and Effect(s) of the Invention] According to the fuel reformer of this invention, before the gas which flows into a coil descends below to the carbon deposit temperature  $T_c$  in the 1st catalyst section, it is discharged from the 1st catalyst section outlet. In response to heat, carry out a temperature rise from a heater in the 1st catalyst section downstream part, subsequently to the 2nd catalyst section enter, and the reforming reaction by the 2nd catalyst section is promoted. Before descending to the temperature below the carbon deposit temperature  $T_c$  also in this 2nd catalyst section, gas is discharged from the 2nd catalyst section outlet, and it is held at the temperature to which reaction temperature always exceeds

carbon deposit temperature by flowing by turns and going such the catalyst section and the heat transfer promotion section. For this reason, since a carbon deposit is suppressed and low operation of S/C value is attained, the effectiveness of a fuel cell system can be improved.

[0014]

[Example] Hereafter, the example of this invention is explained based on a drawing. The fundamental principle of this invention is explained based on drawing 1. The fuel reformer 10 mainly reforms the fuel gas and the steam in material gas. Inside the coil 1 which constitutes this fuel reformer 10, two or more catalyst sections 12, 13, 14, 15, and 16 keep spacing, it is arranged, and heat is transmitted to the catalyst sections 12, 13, 14, 15, and 16 which adjoin each other with the heat transfer promotion sections 5, 6, 7, and 8 from the surrounding heater 2 side. The heater 2 is arranged so that the whole skin of a coil 1 may be wrapped.

[0015] The catalyst sections 12, 13, 14, 15, and 16 use for example, a honeycomb-like catalyst or a pellet type catalyst. A honeycomb-like catalyst carries out the coat of the alumina layer etc. to the internal surface of the honeycomb-like catalyst support of the cordierite which forms the cel of the shape of a blow hole of a bee, and supports a nickel layer etc. by the sinking-in method on it further. A coil 1 is formed with cylinder-like stainless steel. A heating furnace 2 is for example, a combustion burner.

[0016] Principal components are methane and a steam and introduce material gas from the inlet port of a coil 1. The outer wall temperature of a coil 1 is heated at  $900 \pm 100$  degrees C with a heating furnace 2. Material gas is a formula (1) while passing the first catalyst section [ 1st ] 12. The shown chemical reaction is caused.

(Reforming reaction)  $\text{CH}_4 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO} + 3\text{H}_2$  -- (endothermic reaction) (1) This formula (1) Since the shown reaction is endothermic reaction, the temperature of the 1st catalyst section 12 which causes the first catalytic reaction dives. The material gas which passed the 1st catalyst section 12 is heated by transfer of the heat from the periphery section of a coil 1, and when gas temperature rises gradually and carries out a temperature rise, it flows into the 2nd following catalyst section 13. At this 2nd catalyst section, it is a formula (1). The shown endothermic reaction advances again and gas temperature descends. Since the reforming reaction accompanied by a rise and descent of this temperature is performed at the temperature always exceeding the carbon deposit temperature  $T_c$ , a carbon deposit is not generated.

[0017] Thus, whenever material gas passes the catalyst sections 12, 13, 14, 15, and 16, a reforming reaction advances, in after flowing out a coil 1, fuel reforming of material gas is performed good, and  $\text{CO}$ ,  $\text{H}_2$ ,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ , etc. are discharged. This exhaust gas is sent out to  $\text{CO}$  transformer which is not illustrated. Next, the concrete example of a configuration of the fuel reformer suitable for going on a reforming reaction at the temperature which exceeds carbon deposit temperature  $T_c$  temperature as mentioned above is shown in drawing 2 - drawing 4.

[0018] (The 1st example) The 1st example shown in drawing 2 is an example which formed the 1st disc-like catalyst section 22 in the interior of the direct-like coil 21, kept spacing from this 1st catalyst section 22, and has arranged the 2nd catalyst section 23. Material gas flows in the direction of a void arrow head, and passes the 1st catalyst section 22 and the 2nd catalyst section 23. A reforming reaction advances at this time.

[0019] (The 2nd example) The 2nd example shown in drawing 3 is an example which constituted the coil 31 from a double pipe of inner-tube 31a and outer-tube 31b. A heating means transmits heat in the direction of arrow-head Q inside outer-tube 31b from the source of heating which forms a heater in the periphery section of outer-tube 31b, and is arranged at the periphery section of this outer-tube 31b and which is not illustrated. Moreover, it is made to circulate in the direction of an arrow head which shows the heat exchange medium which transmits heat to an outer-tube side at inner-tube 31a to a dotted line. Material gas is made for the passage of the shape of a cross-section doughnut formed inside outer-tube 31b on the outside of inner-tube 31a to flow in the direction shown by the void arrow head. And the 2nd catalyst section 33 is arranged in the location in which spacing was kept from the 1st catalyst section 32 and this 1st catalyst section 32 in the middle of the passage of the shape of this doughnut. Heat is received also from an outside, and material gas is heated, goes into the 2nd following catalyst section

33, advances a reforming reaction while it promotes a reforming reaction and then receives the heat from an inside heat exchange medium in the part between the 1st catalyst section 32 and the 2nd catalyst section 33, when passing the 1st catalyst section 32, and subsequently it is discharged. In this 2nd example, since the passage of material gas is formed in the shape of a doughnut, in order to receive supply of heat from the both sides from the direction outside of a path from the direction inside of a path, since a heat transfer operation is size, there is an advantage of becoming easy to hold reactant gas temperature to the temperature always exceeding carbon deposit temperature.

[0020] (The 3rd example) The 3rd example shown in drawing 4 is an example which constituted the coil 41 from an inner tube 46 and an outer tube 47, and has arranged the inner tube 46 inside the closed-end major-diameter-like outer tube 47. Material gas flows in the direction of a void arrow head. Namely, after flowing caudad in this drawing and making a U-turn at the pars basilaris ossis occipitalis in the anchor ring-like part of the outside of an inner tube 46, the inside inner tube 46 is flowed in the direction of a void arrow head upward. The 1st catalyst section 42, the 2nd catalyst section 43, the 3rd catalyst section 44, and the 4th catalyst section 45 keep spacing, and are arranged at the outside [ of an inner tube 46 ], and wall side of an outer tube 47. After material gas's flowing caudad from the 1st catalyst section 42 side and passing the 4th catalyst section 45, a U-turn is made in a pars basilaris ossis occipitalis, and it flows up through an inner tube 46. On the other hand, heating by burner 48 grade is performed in the lower part of an outer tube 47. therefore , when gas after passing above heat transfer by the convection current phenomenon and the above 4th catalyst section 45 of combustion gas from the outside in the direction showed by the arrow head flow an inner tube 46 up , the gas which flow this inner tube 46 serve as a heat exchange medium , and heat transfer of the heat supply to an outer tube 47 be carry out through the wall of an inner tube 46 inside the outer tube 47 by the side of the direction of the outside of a path from this heat exchange medium . In this example, thermal efficiency has very good structure.

[0021] Also in this 3rd example, it is effective in a good reforming reaction advancing from being held at the temperature to which reactant gas temperature always exceeds carbon deposit temperature. Next, experimental data is shown.

(1) The die-length test of the catalyst section (the 1)

This test is an experiment which investigates the die length of the catalyst section, and the relation of a reaction invert ratio. Experimental data is shown in drawing 5 .

[0022] It turns out that the great portion of catalytic reaction occurs by the entrance side of the catalyst section in an old experiment, and catalytic reaction stops being able to happen easily with a temperature fall as experiment conditions in the outlet side of the catalyst section. For this reason, it is one purpose that the most efficient catalyst section die length gets to know what kind of range it is. Here, a quantity of gas flow, catalyst section die length, and the relation of a reaction invert ratio were investigated.

[0023] The experiment conditions are as follows.

Catalyst section configuration: Honeycomb 20mi160cpi2, 50mmphix (10, 20, 30, 40, 50mmL) quantity-of-gas-flow:SV value 2000, 5000, and 8000hr-1 (catalyst bed volume 50phix200 conversion)

gas presentation: -- H<sub>2</sub> O/CH<sub>4</sub> =4 preheating-furnace temperature: -- 500-degree-C coil outer wall

temperature: -- 900-degree-C reaction invert ratio: -- it calculated from the gas-chromatography analysis result.

[0024]

[Table 1]

単位 %

触媒部長さ (mm)	10	20	30	40	50
SV=2000hr <sup>-1</sup>	69	82	89	90	84
SV=5000hr <sup>-1</sup>	45	49	67	66	60
SV=8000hr <sup>-1</sup>	30	37	53	50	47

[0025] The experimental result was as being shown in drawing 5 and Table 1. As for most change of a reaction invert ratio, catalyst section die length was not seen by 30 and 40 or 50mm so that this experimental result might show. When [ which was comparatively short ] catalyst section die length was 10 or 20mm, as for the reaction invert ratio, the inclination for catalyst section die length to become so low that it be short became clear.

(2) The die-length test of the catalyst section (the 2)

This test is an experiment which investigates the relation between a reaction tube diameter, a quantity of gas flow, and the catalyst section die length until the core temperature of a coil descends to the carbon deposit temperature T<sub>c</sub>. Experimental data is shown in drawing 13.

[0026] The experiment conditions are as follows.

Reaction tube diameter: 20mmphi, 50mmphi quantity-of-gas-flow:SV value 5000 10000hr<sup>-1</sup> (catalyst bed volume 50phix200 conversion)

gas presentation: -- H<sub>2</sub> O/CH<sub>4</sub> =2.5 preheating-furnace temperature: -- 500-degree-C coil outer wall temperature: -- 900 degrees C [0027]

Table 2]

反応管径 (mm)	SV値	反応管の中心部温度が T <sub>c</sub> になるまでの距離
20φ	5000hr <sup>-1</sup>	60mm
	10000hr <sup>-1</sup>	100mm
50φ	5000hr <sup>-1</sup>	20mm
	10000hr <sup>-1</sup>	30mm

[0028] The experimental result was as being shown in drawing 13 and Table 2. The catalyst section die length until the fall of the core temperature of a coil has little one where a reaction tube diameter is smaller to the distance from the inlet port of the catalyst section as for catalyst section die length until



the core temperature of a coil descends to the carbon deposit temperature  $T_c$  and the core temperature of a coil results in  $T_c$  becomes long so that this experimental result may show. However, since the number of coils for processing the gas of a constant rate will increase if a reaction tube diameter is made small, a practical reaction tube diameter is more than 20mmphi. Moreover, if SV value is enlarged, the catalyst section die length until it prevents the fall of the core temperature of a coil and the core temperature of a coil descends to the carbon deposit temperature  $T_c$  will become long. However, if SV value is enlarged, a reaction invert ratio will become low.  $H_2$  O/ $CH_4$  If a ratio is enlarged, the carbon deposit temperature  $T_c$  will fall, but since a heating value required for heating of a superfluous steam increases, operation effectiveness falls.

[0029] On the other hand, a reforming reaction can be performed on condition that reaction tube diameter 20mmphi and SV value 10000hr-1, without catalyst section die length reducing 100mm or less, then the core temperature of a coil below to the carbon deposit temperature  $T_c$ . It turns out that it is more practical than the above-mentioned result to shorten catalyst bed die length as an approach of preventing a carbon \*\* deposit.

[0030] (3) The temperature-distribution test catalyst section die length of the catalyst section observed the temperature change of the catalyst section about the thing (10mm and 40mm). The result is shown in drawing 6. The quantity of gas flow was set to  $SV=5000hr^{-1}$ . Also when catalyst section die length is 10mm so that this drawing 6 may show, also in 40mm, a catalyst section inlet port shows that core temperature has about 300-degree C rapid temperature fall with a shaft-orientations distance of 10mm in between. When catalyst section die length is 10mm, as for this catalyst section outlet, i.e., catalyst section die length, temperature rises after 10mm. On the other hand, when catalyst section die length is 40mm, temperature continues descending further and temperature is rising henceforth from the location whose catalyst outlet side, i.e., catalyst section die length, is 40mm. And it is what has a temperature rise rapid in any case just behind the catalyst section outlet. Therefore, it is thought that spacing of the outlet side of the 1st catalyst section and the inlet-port side of the 2nd catalyst section should just have the distance of enough of extent which reaches the temperature which temperature with a gas temperature high enough, i.e., a carbon deposit, cannot generate easily.

[0031] (4) Temperature distribution of a coil (the 1)

Next, the result in which it experimented about the core temperature distribution within a reaction is shown in drawing 7. This experiment condition was set to coil outer wall temperature:900 degree C and  $SV=5000hr^{-1}$  (catalyst bed die-length conversion of 200mm). The reaction invert ratio was 84%. The experimental result is as being shown in drawing 7.

[0032] As drawing 7 shows, it turns out in the 1st inlet-port part and outlet part of the catalyst section 12 that there is a big temperature gradient. Moreover, it turns out that there is a temperature gradient in an inlet-port part and an outlet part also in the 2nd catalyst section 13. However, it is distinguished that the temperature reduction in the 1st catalyst section 12 is remarkable.

(5) Temperature distribution of a coil (the 2)

Next, the result of having experimented on the equipment used in the experiment shown in drawing 7 about the equipment which formed the heat transfer accelerator 18 in the downstream of the 1st catalyst section 12 further is shown in drawing 8.

[0033] The equipment used as a heat transfer accelerator here is a kind of the static mixer which specifically has the configuration which promotes mixing of gas by the flow of a mixer, i.e., gas. The core temperature distribution of the coil in the fuel reforming machine which formed the heat transfer accelerator 18 shown in drawing 8 are as being shown in drawing 8. Experiment conditions were set to coil outer wall temperature:900 degree C and  $SV=5000hr^{-1}$  (catalyst bed die-length conversion of 200mm) here. The reaction invert ratio was 88%.

[0034] By having formed the heat transfer accelerator 18, the heat from a heating furnace 2 is efficiently told to material gas, and the temperature of the material gas in the inlet-port part of the 2nd catalyst section 13 is high about 120 degrees C compared with drawing 7 so that drawing 8 may show. For this reason, it is thought that the reforming reaction within the 2nd catalyst section 13 was promoted, and the reaction invert ratio improved.

(6) Temperature distribution of a coil (the 3)

Next, the example into which the equipment used in the experiment shown in drawing 8 was developed is shown in drawing 11. With the equipment used in the experiment shown in drawing 11, the 1st heat transfer accelerator 18 was formed between the 1st catalyst section 12 and the 2nd catalyst section 13, and the 2nd heat transfer accelerator 19 was further formed between the 2nd catalyst section 13 and the 3rd catalyst section 14. The thing same as a heat transfer accelerator as the experiment shown in drawing 8 was used.

[0035] The core temperature distribution of the coil in the fuel reforming machine shown in drawing 11 are as being shown in drawing 11. Experiment conditions were set to coil outer wall temperature:900 degree C and SV=5000hr-1 (catalyst bed die-length conversion of 200mm) here. The reaction invert ratio was 89%. The good reaction invert ratio was obtained without dropping the temperature of material gas below to Tc by preparing two or more catalyst sections and two or more heat transfer promotion sections by turns so that drawing 11 may show. Moreover, drawing 11 shows that the temperature gradient is decreasing gradually with the 2nd catalyst section 13 and the 3rd catalyst section 14 compared with the temperature gradient of the inlet-port part of the 1st catalyst section 12, and an outlet part. This is considered for the reforming reaction which advances in the catalyst department to decrease, and for the amount of endoergic to decrease as a reaction invert ratio increases.

[0036] (7) Temperature distribution of a coil (the 4)

The result of the experiment shown in drawing 11 shows that the temperature fall of the material gas per die length of the catalyst section decreases, so that it becomes the downstream of material gas flow. Therefore, it is expected that the shaft-orientations die length of the catalyst section can be lengthened, without depositing carbon so that it becomes the downstream of material gas flow.

[0037] In the equipment used in the experiment shown in drawing 11, the example which lengthened the shaft-orientations die length of the catalyst section of the downstream of material gas flow compared with the shaft-orientations die length of the catalyst section of the upstream is shown in drawing 12. With the equipment shown in drawing 12, the shaft-orientations die length of the catalyst section is 30mm by 20mm and the 2nd catalyst section 13 in the 1st catalyst section 12 at 25mm and the 3rd catalyst section 14. The core temperature distribution of the coil in the fuel reforming machine shown in drawing 12 are as being shown in drawing 12.

[0038] Experiment conditions were set to coil outer wall temperature:900 degree C and SV=5000hr-1 (catalyst bed die-length conversion of 200mm) here. The reaction invert ratio was 93%. Even if it lengthens the die length of the 2nd catalyst section 13 and the 3rd catalyst section 14 from the result of the experiment shown in drawing 12 compared with the experiment shown in drawing 11, it turns out that the minimum temperature in the whole coil of material gas is not different from the experiment shown in drawing 11. Moreover, the die length of the catalyst section was written for a long time, and the good reaction invert ratio of 93% was obtained.

[0039] as explain above, before reducing the amount of temperature reductions by the endothermic reaction of reactant gas by according to this invention preparing spacing for the 1st catalyst section and the 2nd catalyst section, and making the die length of the catalyst section small and reactant gas falling to carbon deposit temperature, it be make to discharge from a catalyst section outlet, and by repeating this actuation, reforming of a fuel can be promote, a carbon deposit can be suppress and the effectiveness of a fuel cell system can be improve.

[0040] In addition, this invention is applicable also to the equipment, for example, the hydrogen generator, other than a fuel cell system.

---

[Translation done.]

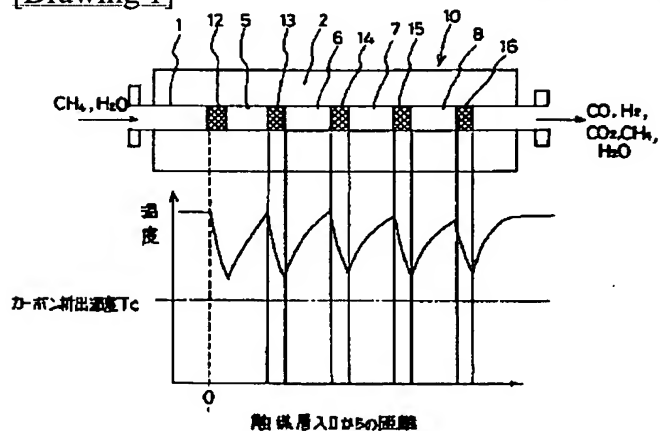
## \* NOTICES \*

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

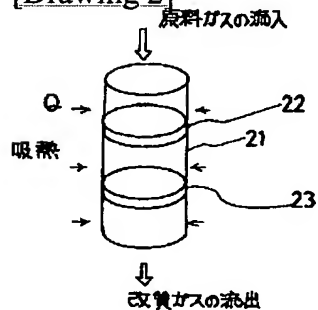
1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

## DRAWINGS

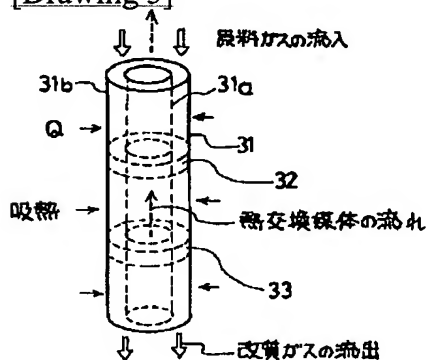
[Drawing 1]



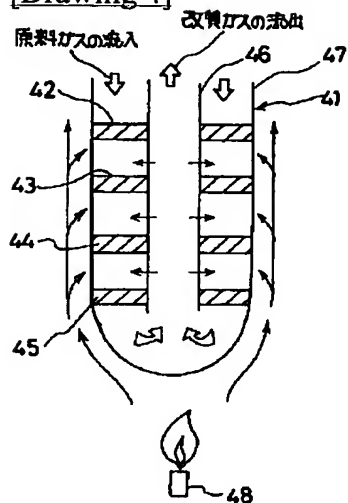
[Drawing 2]



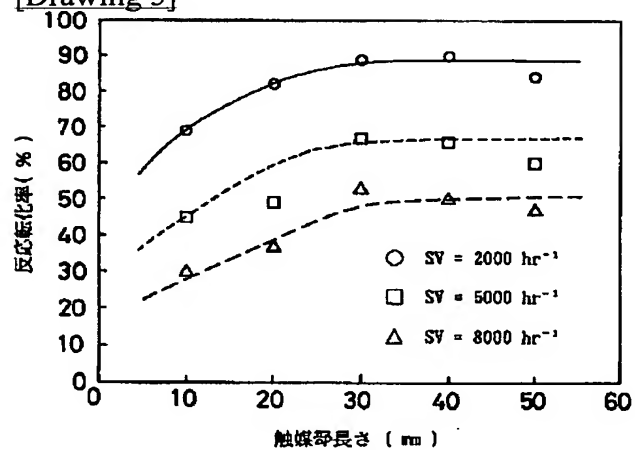
[Drawing 3]



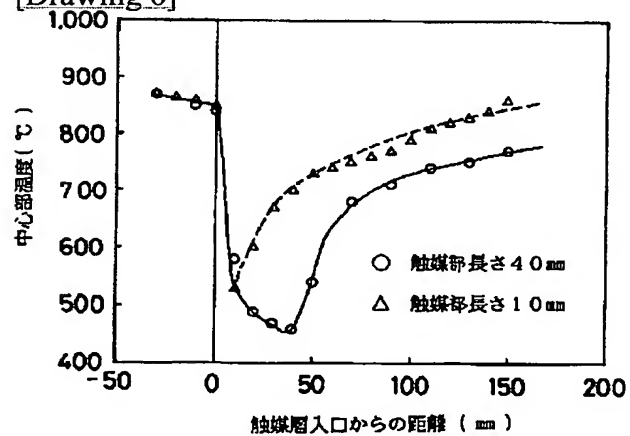
[Drawing 4]



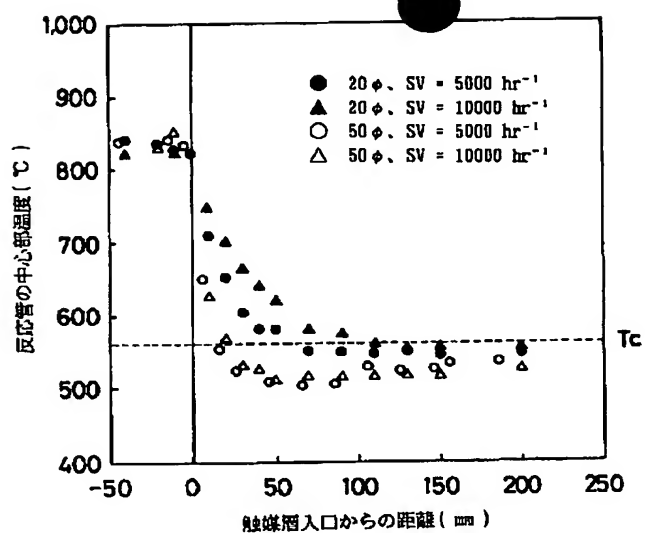
[Drawing 5]



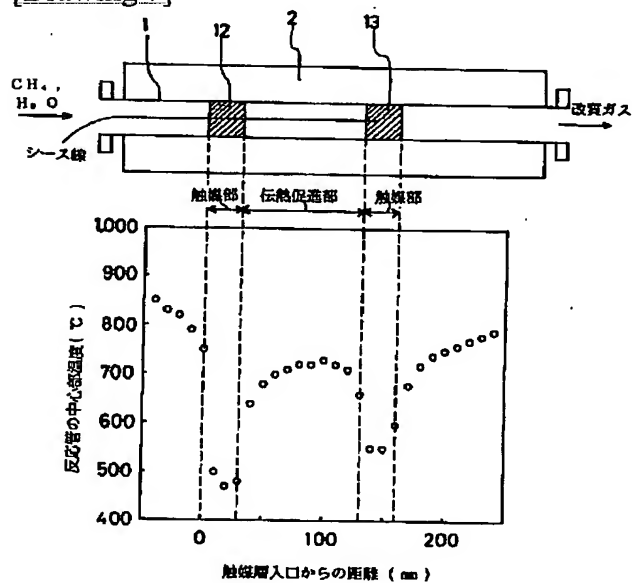
[Drawing 6]



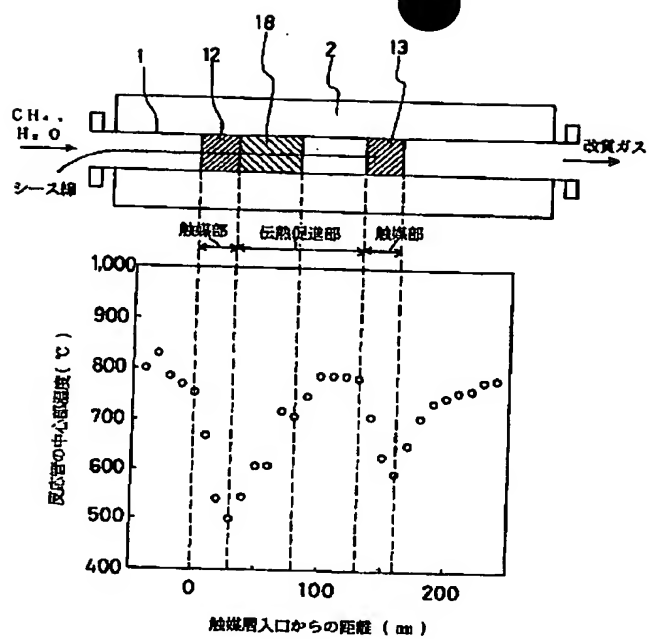
[Drawing 13]



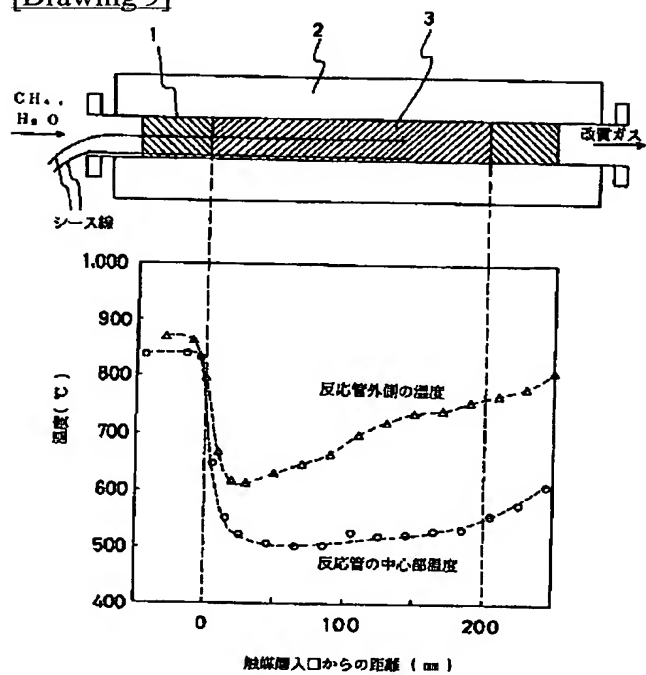
[Drawing 7]



[Drawing 8]

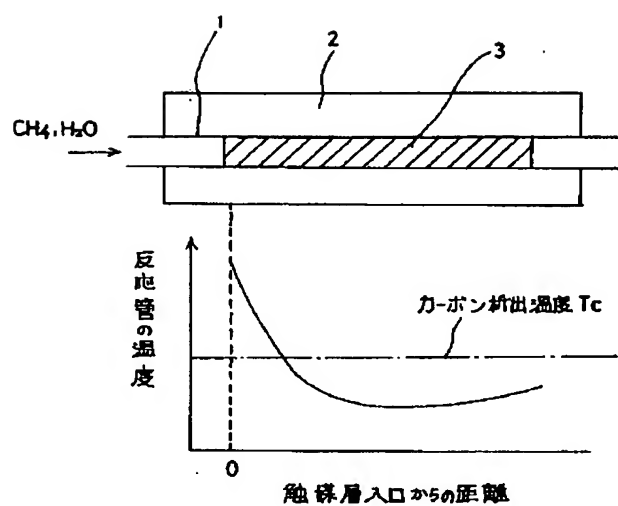


[Drawing 9]

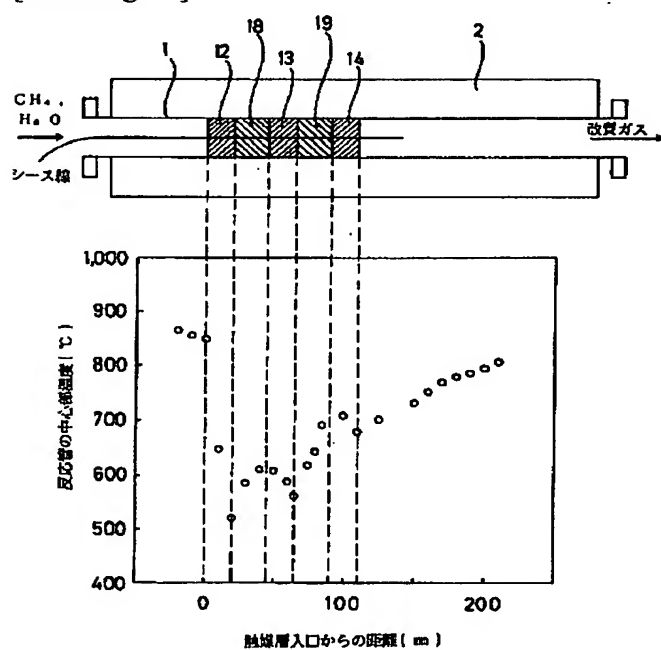


[Drawing 10]

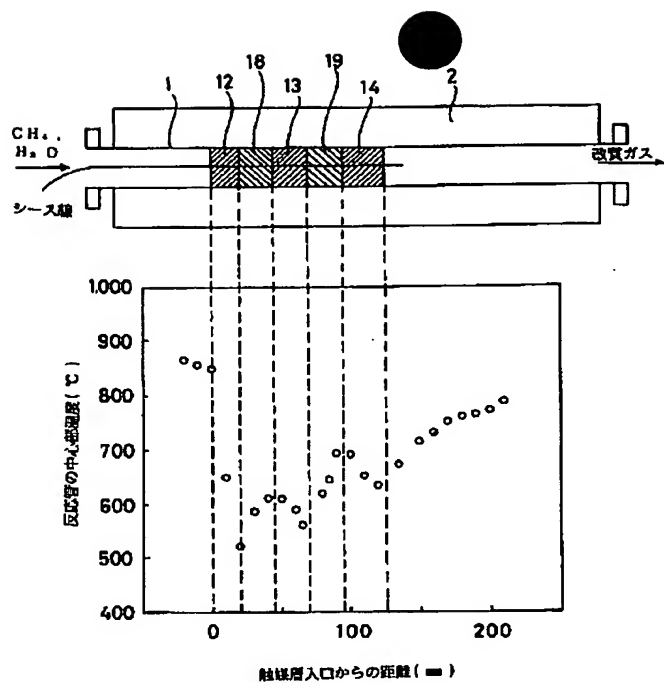
結果



[Drawing 11]



[Drawing 12]



[Translation done.]



(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-67502

(43) 公開日 平成8年(1996)3月12日

(51) Int. Cl.<sup>6</sup>

C 0 1 B 3/38

H 0 1 M 8/06

識別記号

庁内整理番号

F I

技術表示箇所

G

審査請求 未請求 請求項の数 11 O L (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願平6-205246

(22) 出願日 平成6年(1994)8月30日

(71) 出願人 000004064

日本碍子株式会社

愛知県名古屋市長区瑞穂区須田町2番56号

(71) 出願人 000213297

中部電力株式会社

愛知県名古屋市長区東新町1番地

(72) 発明者 三澤 英延

愛知県名古屋市長区瑞穂区須田町2番56号 日

本碍子株式会社内

(72) 発明者 松浦 市朗

愛知県名古屋市長区瑞穂区須田町2番56号 日

本碍子株式会社内

(74) 代理人 弁理士 服部 雅紀

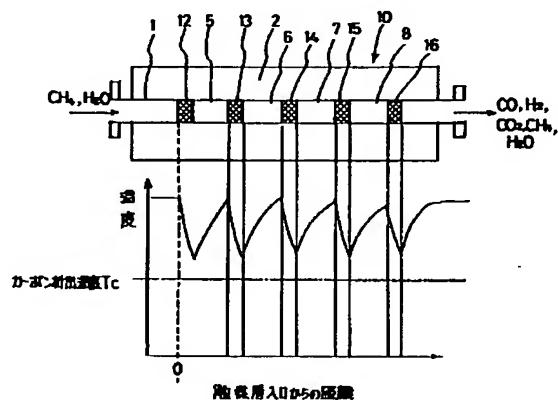
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料改質装置

(57) 【要約】

【目的】 触媒層の体積が小さく触媒量が少なくコストダウンでき、高効率で改質反応を行うことが可能な小型化可能な燃料改質装置を提供する。

【構成】 反応管1に流入するガスが第1の触媒部12においてカーボン析出温度 $T_c$ 以下に降下する前に第1の触媒部12出口から排出され、その第1の触媒部下流側の伝熱促進部5で加熱炉2から熱を受けて温度上昇し、次いで第2の触媒部13に入り第2の触媒部13による改質反応が促進され、この第2の触媒部13においてもカーボン析出温度 $T_c$ 以下の温度に降下する前に第2の触媒部13出口からガスが排出され、このような触媒部12、13、14、15、16と伝熱促進部5、6、7、8を交互に流れて行くことにより、常に反応温度がカーボン析出温度 $T_c$ を超える温度に保持される。このため、カーボン析出が抑えられ、S/C値の低い運転が可能となるので、燃料電池システムの効率を向上することができる。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 原料ガスを流通させる反応管と、この反応管内に配置される第1の触媒部と、この第1の触媒部から間隔を置いて配置される第2の触媒部と、前記反応管を加熱するための加熱器とを備え、前記第1の触媒部と第2の触媒部における温度がカーボン析出を回避する程度の温度に保たれるように前記触媒部の軸方向長さを設定した触媒層を有することを特徴とする燃料改質装置。

【請求項2】 前記触媒部がハニカム状触媒であることを特徴とする請求項1記載の燃料改質装置。

【請求項3】 前記触媒部が流れ方向に所定の長さ以内の薄層であることを特徴とする請求項1記載の燃料改質装置。

【請求項4】 前記触媒部がドーナツ状であることを特徴とする請求項1記載の燃料改質装置。

【請求項5】 前記ドーナツ状の触媒部を一方にガス流通させることを特徴とする請求項4記載の燃料改質装置。

【請求項6】 前記ドーナツ状の触媒部をガス流通させた後そのガスをドーナツ状の触媒部の内穴部分を通過させることを特徴とする請求項4記載の燃料改質装置。

【請求項7】 前記触媒層において、前記触媒部と、互いに隣合う前記触媒部の間の伝熱促進部とが複数個あることを特徴とする請求項1記載の燃料改質装置。

【請求項8】 前記触媒部の軸方向長さは下流側の触媒部の軸方向長さが相対的に長いことを特徴とする請求項1記載の燃料改質装置。

【請求項9】 隣り合う触媒部の間の伝熱促進部に伝熱促進体を設けたことを特徴とする請求項1記載の燃料改質装置。

【請求項10】 一つの触媒部につき入口側よりも出口\*  
(改質反応)  $\text{CH}_4 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow 3\text{H}_2 + \text{CO}$  - 吸熱反応  
(シフト反応)  $\text{CO} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO}_2 + \text{H}_2$  - 発熱反応

## 【0005】

【発明が解決しようとする課題】 かしながら、上記改質反応は吸熱反応であるため、従来の燃料改質装置は反応進行中触媒内に大きな温度降下が起こり、それに伴い反応性も低下する。上記改質反応は、温度500℃以上において進行するが、このとき、改質反応の際にカーボンCの析出を防止するため、反応ガスの $\text{H}_2\text{O}/\text{CH}_4$ の値(この比をS/C値という)を例えば3~4の値にしている。改質反応のS/C値の理論比は1(S/C=1)である。

【0006】 かし、このS/C値を大きくすると、一般には、燃料電池のシステム効率が低下する。これは、過剰水蒸気の加熱に必要な熱量が増加するためである。一般に、反応管においては、図10に示すように、反応管1の外周部に加熱炉2を設置し、反応管1の内部には※50

\* 側の方が相対的に大きな加熱量を受けるように加熱器を設定したことを特徴とする請求項1記載の燃料改質装置。

【請求項11】 前記加熱器は、伝熱ヒータ、バーナのいずれか1個または2個以上のヒータであることを特徴とする請求項10記載の燃料改質装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、燃料改質装置に関するもので、詳細には、燃料電池システム、水素発生装置等の燃料改質装置に配設される触媒層部の構造に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 火力発電や原子力発電等は化石燃料の化学エネルギーを熱エネルギーや核エネルギーに変えてから電気エネルギーを得るのに対し、燃料電池は化学エネルギーから直接電気エネルギーを得る。この燃料電池は、反応物が外部から連続的に供給される化学電池であり、燃料電池本体、燃料改質装置、電力変換装置が主な構成要素であって、これらの構成要素に制御装置、排熱回収装置等が加わり燃料電池システムを構成する。

【0003】 このうち燃料改質装置は、メタン等の燃料ガスと水蒸気とを主成分とする原料ガスを水素リッチの改質ガスへ改質する装置であり、原料ガスを水素と炭酸ガスと一酸化炭素にする改質器と、改質ガス中の一酸化炭素を許容濃度以下にするCO変成器とから構成される。改質器の触媒としては、ペレット状触媒、ハニカム状触媒等が知られている。

【0004】 改質器では、反応管内に充たされた触媒層を原料ガスが通過するとき、原料ガスが改質され、CO変成器に供給される。このとき、水蒸気改質法であるから、加熱器で加熱されることにより反応管内での改質反応が促進され、原料ガスが水素と炭酸ガスと一酸化炭素を含む改質ガスに変換される。

※触媒部3を設け、上流側からメタン等の燃料ガスと水蒸気を矢印方向に流すと、そのとき触媒部3では触媒部の入口側から下流側に行くに従い改質反応の吸熱により温度が低下する。この温度が低下するとカーボンが析出しやすくなる。このカーボン析出反応を起きにくくするためには水蒸気の量を比較的多くする。

【0007】 次に、触媒部に触媒を担持するハニカム担持体を用いた場合のハニカム中心部の温度とハニカム外周部の温度分布を図9に示す。ここで実験条件は、反応管外壁温度：900℃、ガス流量 $SV=5000\text{h}^{-1}$ とした。反応転化率は90%であった。この図9から判るように、ハニカム状触媒においては外周部から中心部への加熱炉による伝熱効果が低いためつまり中心方向への熱伝導性が悪いため、中心部における温度低下量はかなり大きく、中心部においては熱の供給が不足し、原料

ガスの供給量によっては触媒中心部で反応に必要な温度に到達できなくなるという問題がある。

【0008】本発明の目的は、燃料電池のシステム効率を高めるためにS/C値を小さくすることが可能な燃料改質装置を提供することにある。また本発明の他の目的は、低いS/C値で運転が可能な燃料改質装置を提供することにある。さらに本発明の別の目的は、触媒層の体積が小さく触媒量が少なくコストダウンでき、効率よく改質反応を行うことが可能な小型化可能な燃料改質装置を提供することにある。

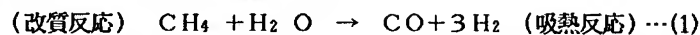
【0009】

【課題を解決するための手段】本発明の燃料改質装置では、請求項1では、原料ガスを流通させる反応管と、この反応管内に配置される第1の触媒部と、この第1の触媒部から間隔を置いて配置される第2の触媒部と、第1の触媒部と第2の触媒部の間に外部から熱を与える伝熱促進部とを備え、第1の触媒部と第2の触媒部における温度がカーボン析出を回避する程度の温度に保たれるように前記触媒部の軸方向長さを設定したことを特徴とする。

【0010】前記触媒部は、ハニカム構造体に担持される触媒、ペレット状触媒を使用することができる。ハニカム触媒を使用する場合、ガスと触媒との接触面積が相対的に大きいため反応効率が向上する。前記触媒部が流れ方向に所定の長さ以内の薄層であることが望ましい。前記触媒層はドーナツ状または環状に形成する。この場合、触媒層の径方向外側と径方向内側の両側から熱を受けることができる。前記ドーナツ状の触媒層を一方にガス流通させることができるし、前記ドーナツ状の触媒層部分をガス流通させた後そのガスをドーナツ状の触媒層の内穴部分を通過させることもできる。

【0011】前記第2の触媒部は複数個設けることができる。すなわち、触媒部と伝熱促進部とを交互に設けることにより、反応管の軸長を相対的に短くして反応転化率を向上することができる。隣り合う触媒部の間に伝熱促進部を設け、この伝熱促進部の上流側に伝熱促進部を設ける。この場合、伝熱促進部の上流側の触媒部出口から排出されたガスの温度を迅速に昇温することができる。

【0012】一個の触媒部につき入口側よりも出口側の方が相対的に大きな加熱量を受けるように加熱器を設定する。これは触媒部入口よりも出口近傍でガス温度が相



この式(1)に示す反応は、吸熱反応であるため、最初の触媒反応を起こす第1の触媒部12の温度が急降下する。第1の触媒部12を通過した原料ガスは、反応管1の外周部からの熱の伝達により加熱されガス温度が次第に上昇し、温度上昇した時点で次の第2の触媒部13に流入する。この第2の触媒部では式(1)に示す吸熱反応が再度進行し、ガス温度が降下する。この温度の上昇および

\* 対的に低いため効果的にガス温度を上昇することができるためである。前記加熱器は、伝熱ヒータ、バーナ等を使用することができる。

【0013】

【作用および発明の効果】本発明の燃料改質装置によると、反応管に流入するガスが第1の触媒部においてカーボン析出温度Tc以下に降下する前に第1の触媒部出口から排出され、その第1の触媒部下流側部分で加熱器から熱を受けて温度上昇し、次いで第2の触媒部に入り第2の触媒部による改質反応が促進され、この第2の触媒部においてもカーボン析出温度Tc以下の温度に降下する前に第2の触媒部出口からガスが排出され、このような触媒部と伝熱促進部を交互に流れて行くことにより、常に反応温度がカーボン析出温度を超える温度に保持されるようになっている。このため、カーボン析出が抑えられ、S/C値の低い運転が可能となるので、燃料電池システムの効率を向上することができる。

【0014】

【実施例】以下、本発明の実施例を図面に基いて説明する。本発明の基本的な原理を図1に基いて説明する。燃料改質装置10は、主に原料ガス中の燃料ガスと水蒸気とを改質するものである。この燃料改質装置10を構成する反応管1の内部には、複数の触媒部12、13、14、15、16が間隔を置いて配置され、伝熱促進部5、6、7、8と隣り合う触媒部12、13、14、15、16には周囲の加熱器2側から熱が伝達されるようになっている。加熱器2は、反応管1の外壁面全体を包むように配備されている。

【0015】触媒部12、13、14、15、16は、例えばハニカム状触媒あるいはペレット状触媒等を使用する。ハニカム状触媒は、蜂の巣状のセルを形成するコーゼライトのハニカム状触媒担体の内壁面にアルミナ層等を被膜し、さらにその上に含浸法によりニッケル層等を担持したものである。反応管1は円筒状のステンレス鋼により形成される。加熱炉2は、例えば燃焼バーナである。

【0016】原料ガスは主成分がメタンと水蒸気であり、反応管1の入口から導入する。反応管1の外壁温度を加熱炉2により例えば900±100℃に加熱する。原料ガスは最初の第1の触媒部12を通過する間に、式(1)に示す化学反応を起こす。

\* および下降を伴う改質反応は常にカーボン析出温度Tcを超える温度で行なわれるため、カーボン析出は発生しない。

【0017】このようにして原料ガスが触媒部12、13、14、15、16を通過するごとに改質反応が進行し、反応管1を流出後には原料ガスの燃料改質が良好に行なわれ、CO、H<sub>2</sub>、CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>、H<sub>2</sub>O等が排

出される。この排出ガスは、図示しないCO変成器に送出される。次に、前述したようにカーボン析出温度 $T_c$ 温度を超える温度で改質反応を進行するのに適した燃料改質装置の具体的な構成例を図2～図4に示す。

【0018】(第1実施例) 図2に示す第1実施例は、直状の反応管21の内部に円板状の第1の触媒部22を設け、この第1の触媒部22から間隔を置いて第2の触媒部23を配置した例である。原料ガスは白抜き矢印方向に流れ、第1の触媒部22および第2の触媒部23を通過する。このときに改質反応が進行する。

【0019】(第2実施例) 図3に示す第2実施例は、反応管31を内管31aと外管31bの二重管で構成した例である。加熱手段は外管31bの外周部に加熱器を設けこの外管31bの外周部に配置される図示しない加熱源から矢印Q方向に外管31bの内部に熱を伝達する。また、内管31aには外管側に熱を伝達する熱交換媒体を点線に示す矢印方向に流通させる。内管31aの外側で外管31bの内側に形成される断面ドーナツ状の流路には白抜き矢印で示す方向に原料ガスを流入させる。そしてこのドーナツ状の流路の途中で第1の触媒部32とこの第1の触媒部32から間隔を置いた位置に第2の触媒部33とが配置される。原料ガスは第1の触媒部32を通過するときに改質反応を促進し、次に第1の触媒部32と第2の触媒部33の間の部分で内側の熱交換媒体からの熱を受けるとともに外側からも熱を受け、加熱され次の第2の触媒部33に入り改質反応を進行し、次いで排出されていく。この第2実施例では、原料ガスの流路がドーナツ状に形成されるため、径方向内側からと径方向外側からの両側から熱の供給を受けるため、伝熱作用が大であることから反応ガス温度を常にカーボン析出温度を超える温度に保持しやすくなるという利点がある。

【0020】(第3実施例) 図4に示す第3実施例は、反応管41を内管46と外管47で構成し、有底大径状の外管47の内部に内管46を配置した例である。原料ガスは白抜き矢印方向に流れる。すなわち内管46の外側のドーナツ形状部分をこの図では下方に流れ、底部でUターンした後内側の内管46を上方向に白抜き矢印方向に流れるようになっている。内管46の外側と外管47の内壁側には第1の触媒部42、第2の触媒部43、第3の触媒部44、第4の触媒部45が間隔を置いて配置されている。第1の触媒部42側から原料ガスが下方に流れ第4の触媒部45を通過した後底部においてUターンして内管46を通過して上方に流れる。一方外管47の下方にはバーナ48等による加熱が行なわれる。従って外管47に供給される熱は、矢印で示した方向に外部からの燃焼ガスの上方向への対流現象による熱伝達と、第4触媒部45を通過した後のガスが内管46を上方に流れるときにこの内管46を流れるガスが熱交換媒体となってこの熱交換媒体から内管46の壁を通過して径外方

向側の外管47の内側に熱伝達される。この例では熱効率が極めて良好な構造となっている。

【0021】この第3実施例においても、反応ガス温度が常時カーボン析出温度を超える温度に保持されることから、良好な改質反応が進行するという効果がある。次に実験データを示す。

#### (1) 触媒部の長さテスト(その1)

このテストは、触媒部の長さで反応転化率の関係を調査する実験である。実験データを図5に示す。

10 【0022】実験条件としては、これまでの実験で触媒部の入口側で触媒反応の大部分が起こり触媒部の出口側では温度低下にともない触媒反応が起こりにくくなることが判っている。このため、最も効率的な触媒部長さはどのような範囲かを知ることが一つの目的である。ここでは、ガス流量と、触媒部長さと、反応転化率の関係を調査した。

【0023】実験条件は次のとおりである。

触媒部形状：ハニカム20mi160cpi<sup>2</sup>、50mmφ×(10,20,30,40,50mmL)

20 ガス流量：SV値 2000,5000,8000hr<sup>-1</sup> (触媒層体積50φ×200 換算)

ガス組成：H<sub>2</sub> O/C<sub>2</sub>H<sub>4</sub> =4

予熱炉温度：500℃

反応管外壁温度：900℃

反応転化率：ガスクロマトグラフィー分析結果より計算した。

【0024】

【表1】

単位 %

30

触媒部長さ (mm)	10	20	30	40	50
SV=2000hr <sup>-1</sup>	69	82	89	90	84
SV=5000hr <sup>-1</sup>	45	49	67	66	60
SV=8000hr <sup>-1</sup>	30	37	53	50	47

40

【0025】実験結果は図5ならびに表1に示すとおりであった。この実験結果から判るように、触媒部長さが30、40、50mmでは、反応転化率の変化はほとんど見られなかった。触媒部長さが10、20mmの比較的短い場合、反応転化率は触媒部長さが短いほど低くなる傾向が判明した。

50 (2) 触媒部の長さテスト(その2)

このテストは、反応管径と、ガス流量と、反応管の中心部温度がカーボン析出温度 $T_c$ に降下するまでの触媒部長さとの関係を調査する実験である。実験データを図13に示す。

【0026】実験条件は次のとおりである。

反応管径：20mmφ、50mmφ

ガス流量：SV値 5000, 10000 $hr^{-1}$ （触媒層体積50φ×200 換算）

ガス組成： $H_2O/CH_4 = 2.5$

予熱炉温度：500℃

反応管外壁温度：900℃

【0027】

【表2】

反応管径 (mm)	SV値	反応管の中心部温度が $T_c$ になるまでの距離
20φ	5000 $hr^{-1}$	60mm
	10000 $hr^{-1}$	100mm
50φ	5000 $hr^{-1}$	20mm
	10000 $hr^{-1}$	30mm

【0028】実験結果は図13ならびに表2に示すとおりであった。この実験結果から判るように、反応管の中心部温度がカーボン析出温度 $T_c$ に降下するまでの触媒部長さは、反応管径が小さい方が触媒部の入口からの距離に対して反応管の中心部温度の低下が少なく、反応管の中心部温度が $T_c$ に至るまでの触媒部長さが長くなる。しかし、反応管径を小さくすると一定量のガス进行处理するための反応管数が増えるため、実用的な反応管径は20mmφ以上である。また、SV値を大きくすると、反応管の中心部温度の低下を防いで反応管の中心部温度がカーボン析出温度 $T_c$ に降下するまでの触媒部長さが長くなる。しかし、SV値を大きくすると反応転化率は低くなる。 $H_2O/CH_4$ の比を大きくするとカーボン析出温度 $T_c$ は下がるが、過剰水蒸気の加熱に必要な熱量が増加するため運転効率が低下する。

【0029】一方、反応管径20mmφ、SV値10000 $hr^{-1}$ の条件では、触媒部長さを100mm以下とすれば反応管の中心部温度をカーボン析出温度 $T_c$ 以下に低下させることなく改質反応を行うことができる。上記の結果より、カーボン析出を防止する方法としては、触媒層長さを短くすることが実用的であることが判る。

【0030】(3) 触媒部の温度分布テスト

触媒部長さが10mmと40mmのものについて、触媒部の温度変化を観察した。その結果を図6に示す。ガス流量は $SV=5000hr^{-1}$ とした。この図6から判るように、触媒部長さが10mmの場合も40mmの場合も、触媒部入口から10mmの軸方向距離の間に中心部温度は約300℃もの急激な温度低下があることが判る。触媒部長さが10mmの場合、この触媒部出口すなわち触媒部長さが10mm以後温度が上昇する。これに対し触媒部長さが40mmの場合、さらに温度が降下し続け触媒部出口面すなわち触媒部長さが40mmの位置から以降において温度が上昇している。しかも触媒部出口直後はいずれの場合も温度上昇が急激なものとなっている。従って、第1の触媒部の出口面と第2の触媒部の入口面との間隔は、ガス温度が十分に高い温度すなわちカーボン析出が発生しにくい温度に到達する程度の距離が十分あればよいと考えられる。

【0031】(4) 反応管の温度分布（その1）

次に、反応管内の中心部温度分布について実験した結果を図7に示す。この実験条件は、反応管外壁温度：900℃、 $SV=5000hr^{-1}$ （触媒層長さ200mm換算）とした。反応転化率は84%であった。その実験結果は図7に示すとおりである。

【0032】図7から判るように、第1の触媒部12の入口部分と出口部分とは大きな温度差があることが判る。また第2の触媒部13においても入口部分と出口部分とで温度差があることが判る。しかし、第1の触媒部12においての温度降下が顕著なものであるということが判別される。

(5) 反応管の温度分布（その2）

次に図7に示す実験で用いた装置にさらに第1の触媒部12の下流側に伝熱促進体18を設けた装置について実験を行なった結果を図8に示す。

【0033】ここで伝熱促進体として用いた装置は、具体的には混合器つまりガスの流れによってガスの混合を促進する形状をもつスタティックミキサーの一種である。図8に示す伝熱促進体18を設けた燃料改質器における反応管の中心部温度分布は、図8に示すとおりである。ここで実験条件は、反応管外壁温度：900℃、 $SV=5000hr^{-1}$ （触媒層長さ200mm換算）とした。反応転化率は88%であった。

【0034】図8から判るように、伝熱促進体18を設けたことにより加熱炉2からの熱が原料ガスに効率よく伝えられ、第2の触媒部13の入口部分における原料ガスの温度が図7に比べて120℃ほど高くなっている。このため、第2の触媒部13内での改質反応が促進されて反応転化率が向上したものと考えられる。

(6) 反応管の温度分布（その3）

次に、図8に示す実験で用いた装置を発展させた例を図11に示す。図11に示す実験で用いた装置では、第1

の触媒部12と第2の触媒部13との間に第1の伝熱促進体18を設け、さらに第2の触媒部13と第3の触媒部14との間に第2の伝熱促進体19を設けた。伝熱促進体としては、図8に示す実験と同じものを用いた。

【0035】図11に示す燃料改質器における反応管の中心部温度分布は、図11に示すとおりである。ここで実験条件は、反応管外壁温度：900℃、SV=5000hr<sup>-1</sup>（触媒層長さ200mm換算）とした。反応転化率は89%であった。図11から判るように、複数の触媒部と複数の伝熱促進部とを交互に設けることにより、原料ガスの温度をTc以下に降下させることなく良好な反応転化率が得られた。また、図11から、第1の触媒部12の入口部分と出口部分との温度差に比べて、第2の触媒部13、第3の触媒部14と次第に温度差が少なくなっていることが判る。これは、反応転化率が上がるにつれて触媒部内で進行する改質反応が少なくなり吸熱量が減少するためと考えられる。

【0036】(7) 反応管の温度分布（その4）

図11に示す実験の結果から、原料ガス流れの下流側になるほど触媒部の長さあたりの原料ガスの温度低下が少なくなることが判る。したがって、原料ガス流れの下流側になるほどカーボン析出させることなく触媒部の軸方向長さを長くできることが予想される。

【0037】図11に示す実験で用いた装置において、原料ガス流れの下流側の触媒部の軸方向長さを上流側の触媒部の軸方向長さに比べて長くした例を図12に示す。図12に示す装置では、触媒部の軸方向長さは、第1の触媒部12では20mm、第2の触媒部13では25mm、第3の触媒部14では30mmである。図12に示す燃料改質器における反応管の中心部温度分布は、図12に示すとおりである。

【0038】ここで実験条件は、反応管外壁温度：900℃、SV=5000hr<sup>-1</sup>（触媒層長さ200mm換算）とした。反応転化率は93%であった。図12に示す実験の結果から、図11に示す実験に比べて第2の触媒部13および第3の触媒部14の長さを長くしても、原料ガスの反応管全体における最低温度は図11に示す実験と変わらないことが判る。また、触媒部の長さを長くしたため93%という良好な反応転化率が得られた。

【0039】以上説明したように、本発明によると、第1の触媒部と第2の触媒部を間隔を設けて触媒部の長さ

を小さくすることで反応ガスの吸熱反応による温度降下量を低減し、反応ガスがカーボン析出温度に低下する前に触媒部出口から排出するようにし、この操作を繰り返すことにより燃料の改質を促進し、カーボン析出を抑えて、燃料電池システムの効率を向上することができる。

【0040】なお、本発明は、燃料電池システム以外の装置、例えば水素発生装置にも適用することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の燃料改質装置の原理を説明する説明図である。

【図2】本発明の第1実施例による反応管構造の具体例を示す模式的斜視図である。

【図3】本発明の第2実施例による反応管構造の具体例を示す模式的斜視図である。

【図4】本発明の第3実施例による反応管構造の具体例を示す模式的斜視図である。

【図5】本発明の実験データを示すデータ図である。

【図6】本発明の実験データを示すデータ図である。

【図7】本発明の実験データを示すデータ図である。

【図8】本発明の実験データを示すデータ図である。

【図9】従来例の実験データを示すデータ図である。

【図10】従来例の反応管内の温度分布を示す図である。

【図11】本発明の実験データを示すデータ図である。

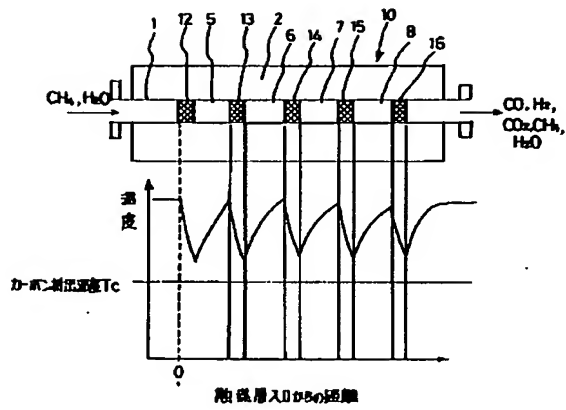
【図12】本発明の実験データを示すデータ図である。

【図13】本発明の実験データを示すデータ図である。

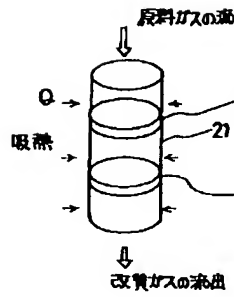
【符号の説明】

- 1 反応管
- 2 加熱炉（加熱器）
- 5、6、7、8 伝熱促進部
- 12、13、14、15、16 触媒部
- 18、19 伝熱促進体
- 21 反応管
- 22、23 触媒部
- 31 反応管
- 32、33 触媒部
- 41 反応管
- 42、43、44、45 触媒部
- 46 内管
- 47 外管

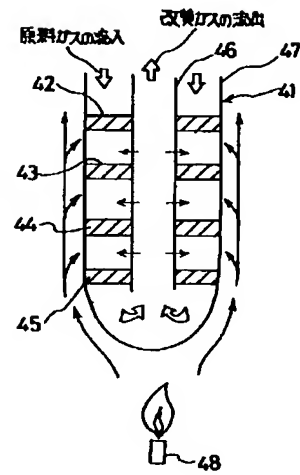
【図1】



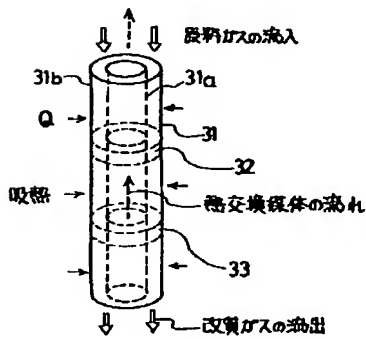
【図2】



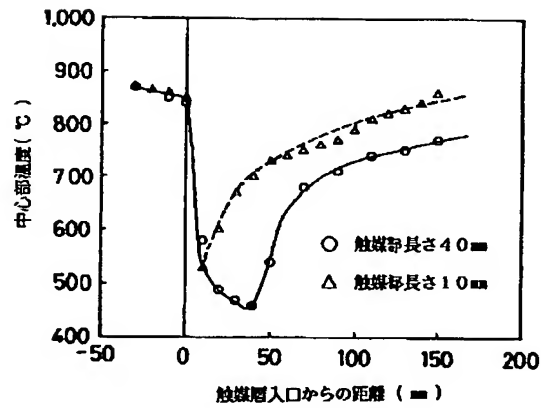
【図4】



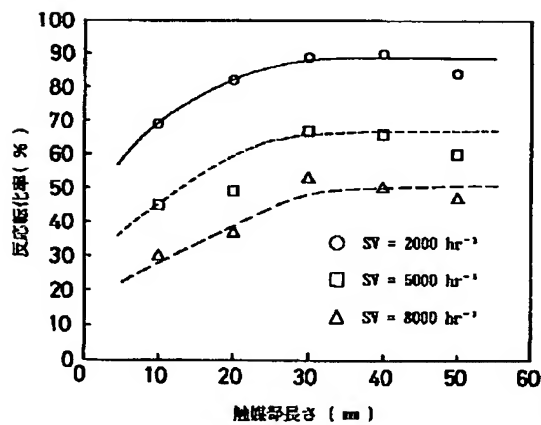
【図3】



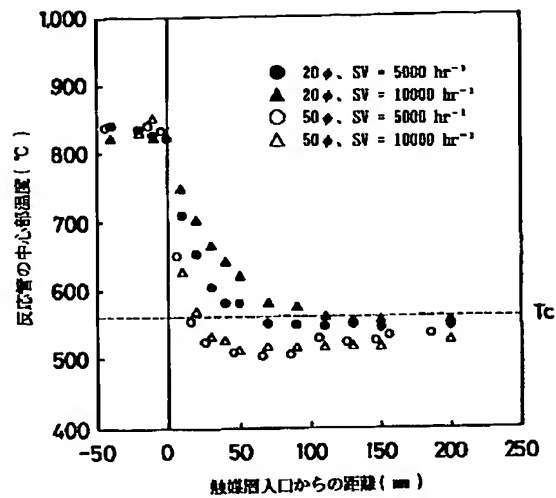
【図6】



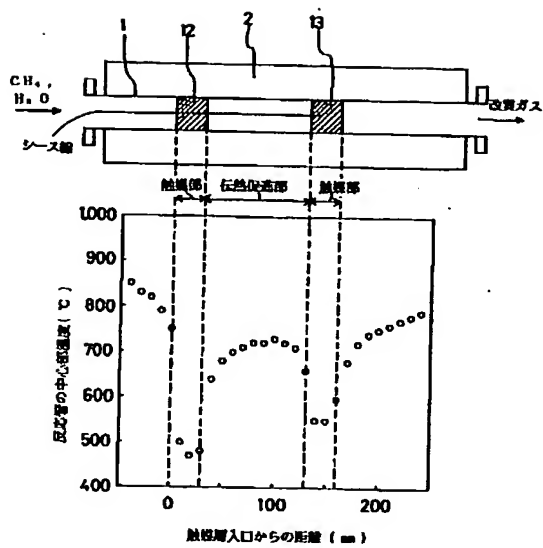
【図5】



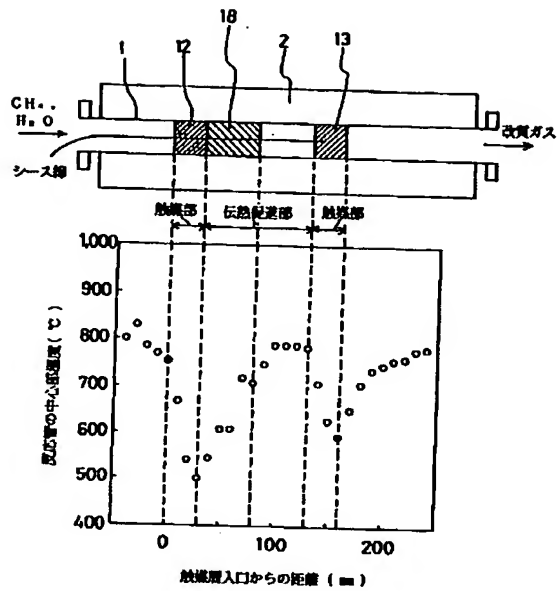
【図13】



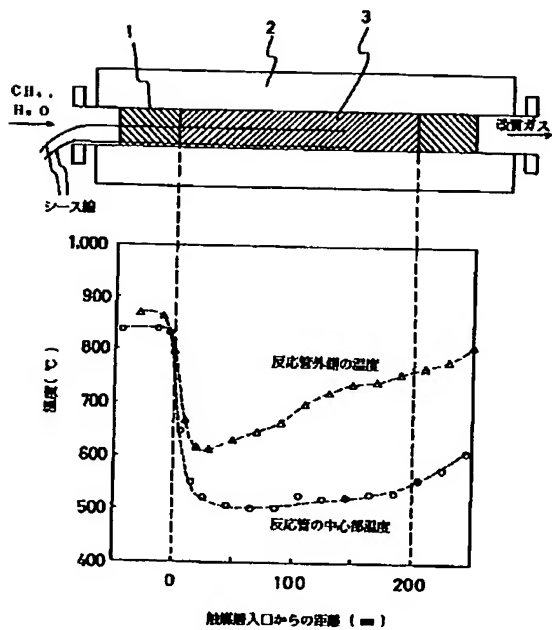
【図7】



【図8】

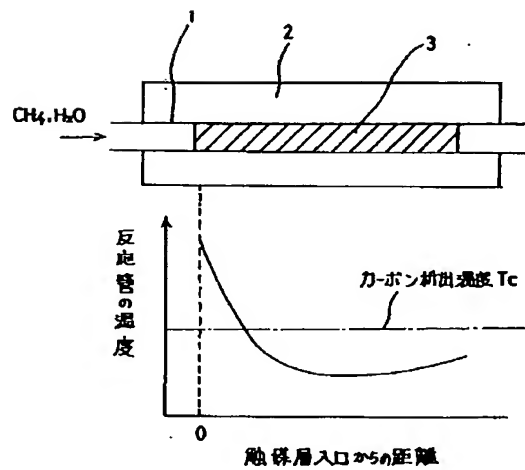


【図9】



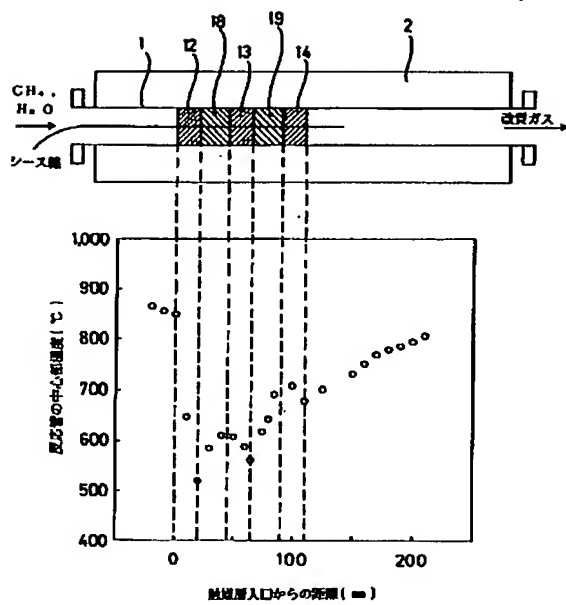
【図10】

能束例

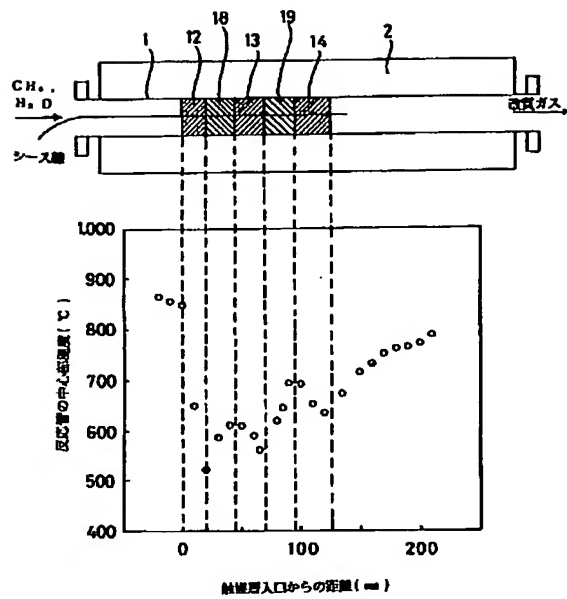




【図11】



【図12】



フロントページの続き

(72)発明者 江崎 義美

愛知県名古屋市緑区大高町字北関山20番地  
の1 中部電力株式会社電力技術研究所内

(72)発明者 服部 雅俊

愛知県名古屋市緑区大高町字北関山20番地  
の1 中部電力株式会社電力技術研究所内